



19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

12 Offenlegungsschrift  
10 DE 199 25 316 A 1

51 Int. Cl.<sup>7</sup>:  
C 10 J 3/62  
C 10 K 1/00  
F 23 G 5/027

21 Aktenzeichen: 199 25 316.1  
22 Anmeldetag: 27. 5. 1999  
43 Offenlegungstag: 30. 11. 2000

DE 199 25 316 A 1

71 Anmelder:  
Technip Benelux B.V., Zoetermeer, NL; DMT GmbH,  
45307 Essen, DE; Ferrostaal AG, 45128 Essen, DE  
74 Vertreter:  
P. Meissner und Kollegen, 14199 Berlin

72 Erfinder:  
Oosterkamp, Paul, van den, s-Gravenhage, NL;  
Kubiak, Helmut, Dr.-Ing., 44653 Herne, DE; Mühlen,  
Hans-Jürgen, Dr., 48167 Münster, DE; Knop, Klaus,  
Dr., 45128 Essen, DE

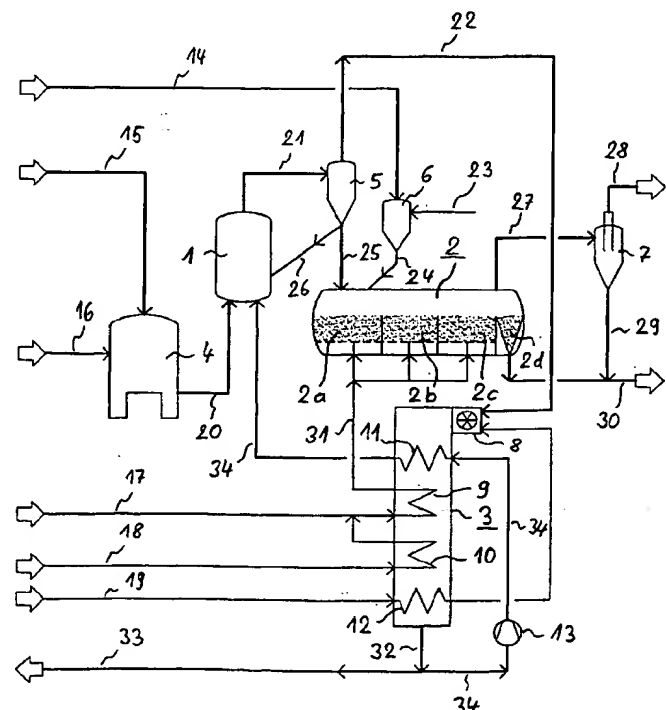
56 Entgegenhaltungen:  
DE 42 38 934 C2  
DE 29 33 402 C2  
WO 93 02 162 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

54 Verfahren und Anlage zur autothermen Vergasung von festen Brennstoffen

57 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur autothermen Vergasung von festen Brennstoffen unter Überdruck mit einem O<sub>2</sub>-haltigen Gas, wobei die Brennstoffe zunächst einer thermischen Vorbehandlung durch direkten Kontakt mit einem heißen Rauchgasstrom unter Abspaltung von Gasen und Dämpfen und Bildung eines versprödeten Zwischenproduktes unterzogen werden und wobei der heiße Rauchgasstrom in einer Verbrennung unter Zufuhr der in der thermischen Vorbehandlung abgespaltenen Gase und Dämpfe erzeugt wird, wobei ferner das in der Vorbehandlung erzeugte Zwischenprodukt in feinteiliger Form der Vergasung unter Bildung eines an H<sub>2</sub> und CO reichen Synthesegases unterzogen wird.  
Die Erfindung ist dadurch gekennzeichnet,  
- daß der Brennstoff in feinteiliger Form eingesetzt wird,  
- daß die thermische Vorbehandlung als Pyrolyse mit einer Endtemperatur von mindestens 450°C durchgeführt wird,  
- daß die Vergasung unter Zufuhr von Wasserdampf stattfindet und  
- daß dem heißen Rauchgasstrom vor seiner Einleitung in die thermische Vorbehandlung Wärme zur Erzeugung des zur Vergasung benötigten Gemischs aus Dampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas entzogen wird.  
Die Erfindung betrifft desweiteren eine Anlage zur Durchführung des angegebenen Verfahrens.



DE 199 25 316 A 1

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur autothermen Vergasung von festen Brennstoffen gemäß dem Oberbegriff des Patentanspruchs 1 sowie eine Anlage zur Durchführung dieses Verfahrens.

- 5 Aus der DE 42 38 934 C2 ist ein Verfahren zur Vergasung von organischen oder organisches Material enthaltenden Roh- und Abfallstoffen bekannt, bei dem die Roh- und Abfallstoffe zunächst durch direkten Kontakt mit einem aufgeheizten, im Kreislauf geförderten Gasstrom auf eine Endtemperatur zwischen 120 und 350°C erhitzt werden, wobei durch diese thermische Vorbehandlung die Roh- und Abfallstoffe unter Abspaltung von Gasen und Dämpfen in ein versprödetes Zwischenprodukt überführt werden. Dabei enthalten die abgespaltenen Gase und Dämpfe keine nennenswerten Mengen an brennbaren Bestandteilen. Die Aufheizung des im Kreislauf geführten Gasstromes erfolgt durch Zumischen eines Frischgases, welches durch Verbrennung eines Heizgases gewonnen wird. Als Heizgas wird vorzugsweise eine Teilmenge des durch das Verfahrens erzeugten Synthesegases eingesetzt. Aus dem Kreislaufgasstrom wird dabei jeweils eine Teilmenge abgestoßen, die der Summe der Volumenströme des Frischgases und der abgespaltenen Gase und Dämpfe aus der thermischen Vorbehandlung entspricht. Aus der thermischen Vorbehandlungsstufe wird ein versprödetes Zwischenprodukt abgezogen, das zu einem Feingut mit einer Korngröße von im wesentlichen kleiner als 1 mm zerkleinert und anschließend einer Flugstromvergasung unterzogen wird, wobei ein CO- und H<sub>2</sub>-reiches Gas erzeugt wird. Für die thermische Vorbehandlung werden abhängig von der Art des eingesetzten Materials unterschiedliche Temperaturbereiche als günstig beschrieben. Für Holz und Stroh werden Temperaturen im Bereich von 180 bis 190°C, für eine kunststoffhaltige Hausmüllfraktion Temperaturen im Bereich von 220 bis 230°C und für ein Schreddergut mit höherem PVC-Anteil eine Temperatur von etwa 300°C als besonders günstig vorgeschlagen. Die Brennkammer zur Beheizung der Stufe der thermischen Vorbehandlung ist unmittelbar an diese Vorbehandlungsstufe angeschlossen. Die Teilmenge, die aus dem Kreislaufgasstrom abgestoßen werden muß, wird daher aus dem Gasstrom abgezweigt, der die Vorbehandlungsstufe verläßt, also nach Nutzung des Wärmeinhalts des Abgases. Daher enthält diese Teilmenge in jedem Fall auch einen Teil der in der Vorbehandlungsstufe freigesetzten Gase und Dämpfe, so daß er nicht ohne weiteres in die Atmosphäre abgeleitet werden darf. Das bekannte Verfahren sieht daher den Einsatz eines Aktivkohlefilters vor, durch den der abgestoßene Gasstrom gereinigt wird. Das Filtermaterial des Aktivkohlefilters wird in regelmäßigen Abständen dadurch entsorgt, daß es der Vergasungsstufe zugeführt wird. Dieses Verfahren erfordert daher einen entsprechenden Anlagen- und Betriebsaufwand für die Filtereinrichtung.

- Die Vergasung wird bei dem bekannten Verfahren ohne Wasserdampf unter Zufuhr von reinem Sauerstoff in Form einer Flammenreaktion bei einer relativ hohen Temperatur von etwa 1300°C durchgeführt. Diese hohe Temperatur ist einerseits erforderlich, um die in der Filtermasse enthaltenen Schadstoffe, die im wesentlichen aus höheren Kohlenwasserstoffen bestehen, mit hinreichender Sicherheit abzubauen und zum anderen eine schmelzflüssige Schlacke zu erzeugen. Diese schmelzflüssige Schlacke und das im Vergaser erzeugte Synthesegas werden in einem Quenchraum, der sich unmittelbar unterhalb des Reaktionsraums der Vergasung befindet, mit Quenchwasser abgekühlt, so daß die Schlacke zu einem Granulat erstarrt. Das aus dem Quenchraum abgezogene, mit Dampf gesättigte Gas wird anschließend einer Gasreinigung und einer Gasreinigung unterzogen und danach zum Beispiels in einem Blockheizkraftwerk mit Gasmotoren verwendet. Hierfür steht jedoch nicht die Gesamtmenge des erzeugten Synthesegases zur Verfügung, da ein Teil des Gases dem Gasgenerator zur Erzeugung einer Stützflamme für die Flammenreaktion und/oder der Brennkammer für die Beheizung der thermischen Vorbehandlung zugeführt wird. Anderenfalls muß hierfür Gas aus Quellen außerhalb des Verfahrens eingesetzt werden. Das im Quenchraum verwendete Quenchwasser muß, so weit es nicht verdampft ist, abgeführt und wegen der in ihm gelösten Schadstoffe einer Abwasserreinigung mit entsprechendem Aufwand zugeführt werden.

- Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Verfahren der eingangs genannten Art dahingehend weiterzubilden, daß eine Filterung des Abgases zur Abtrennung von Kohlenwasserstoffen aus dem Abgas nicht mehr erforderlich ist. Außerdem soll der Aufwand eine Abwasserreinigung auf ein Minimum reduziert werden. Schließlich soll die Vergasung bei einer möglichst niedrigen Betriebstemperatur durchführbar und das dabei erzeugte Synthesegas ohne eine aufwendige Gasreinigung für andere technische Prozesse, insbesondere als Reduktionsgas für die Roheisenerzeugung durch Direktreduktion von Eisenoxiden einsetzbar sein. Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht darin, eine Anlage zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens vorzuschlagen.

- 50 Gelöst wird diese Aufgabe erfindungsgemäß hinsichtlich des Verfahrens mit den im Patentanspruch 1 angegebenen Merkmalen. Vorteilhafte Weiterbildungen dieses Verfahrens ergeben sich aus den abhängigen Unteransprüchen. Eine erfindungsgemäße Vorrichtung zur Durchführung dieses Verfahrens weist die Merkmale des unabhängigen Anspruchs 18 auf und ist durch die Merkmale der abhängigen Unteransprüche vorteilhaft weiterzubilden.

- Die wesentlichen Grundgedanken der vorliegenden Erfindung bestehen darin, daß ein vorzerkleinerter Brennstoff zunächst einer Pyrolyse unterzogen wird, in der eine weitgehend vollständige Entgasung des Brennstoffs gewährleistet ist. Nach Abtrennung der Gase und Dämpfe von dem auf diese Weise als Zwischenprodukt erzeugten koksartigen, feinteiligen Brennstoff wird dieser Brennstoff ohne die Pyrolysegase in die Vergasungsstufe eingeführt, die im Vergleich zu einer Flammenreaktion bei relativ geringer Temperatur von zum Beispiel 700 bis 900°C, vorzugsweise etwa 750°C betrieben werden kann. Die in der Pyrolyse freigesetzten Gase und Dämpfe, die weitaus überwiegend aus brennbaren Stoffen bestehen, werden einer möglichst vollständigen Verbrennung in einer Brennkammer unterzogen, die das heiße Rauchgas für eine direkte Beheizung der Pyrolysestufe liefert. Dadurch ist gewährleistet, daß höhere Kohlenwasserstoffe und Schadstoffe sowie ein Großteil der Schwefelverbindungen sicher aus dem vorbehandelten Brennstoff entfernt sind, bevor dieser in die Vergasungsstufe gelangt. Hierdurch wird ein Synthesegas erzeugbar, das von vornherein einen hohen Reinheitsgrad aufweist, also insbesondere frei ist von höheren Kohlenwasserstoffen und nur geringe Schwefelverbindungen enthält. Das erfindungsgemäße Verfahren zeichnet sich weiterhin dadurch aus, daß aus dem durch die Verbrennung der in der Pyrolyse erzeugten Gase und Dämpfe gebildeten Rauchgas Wärme abgezogen wird zur Erzeugung des in der Vergasungsstufe benötigten Gemischs aus Wasserdampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas, bevor das Rauchgas zur Beheizung der Pyrolysestufe verwendet wird. Dadurch wird die Temperatur des Rauchgases deutlich herabgesetzt, so daß der Teilstrom

des Rauchgases, der aus Gründen der Massenerhaltung aus dem Kreislauf abgeführt werden muß, noch vor der Pyrolysestufe abgezweigt werden kann, ohne daß dabei zu große Wärmeverluste entstehen.

Anhand des in der einzigen Figur dargestellten Anlagenschemas wird die Erfindung nachfolgend näher erläutert.

Das in der Figur dargestellte Anlagenschema gibt eine mögliche Ausführungsform der Erfindung wieder. Die Hauptkomponenten der Anlage sind ein Aggregat **1** zur Durchführung der Pyrolyse sowie ein Vergaser **2**, der in bevorzugter Ausführung der Erfindung als liegender Gasgenerator ausgebildet ist, und eine Brennkammer **3**. Dem Aggregat **1** wird über eine Zuleitung **20** aus einem Vorratsbehälter **4** vorzugsweise auf pneumatischem Wege feinteiliger Brennstoff zugeführt. Dieser Brennstoff, der vorzugsweise aus gemahlener und getrockneter Steinkohle oder Braunkohle besteht, wird über eine Aufgabevorrichtung **15** in den Vorratsbehälter **4** eingespeist. Als Brennstoff kommen – wenn auch weniger bevorzugt – grundsätzlich auch andere Feststoffe mit hohen organischen Anteilen in Frage, beispielsweise zerkleinertes Holz oder zerkleinerte Biomasse oder Abfallstoffe. Wenn Kohle eingesetzt wird, ist diese auch dann mit dem erfindungsgemäßen Verfahren noch gut verarbeitbar, wenn diese einen relativ hohen Aschegehalt aufweist.

Um eine Selbstentzündung des aufbereiteten feinteiligen trockenen Brennstoffs im Vorratsbehälter **4** zu vermeiden, wird dieser mit einem inerten Gas (z. B. Stickstoff) geflutet. Hierzu ist eine Inertgaszuleitung **16** vorgesehen.

Die Pyrolysestufe ist in der Figur in bevorzugter Ausführung der Erfindung als zirkulierende Wirbelschicht (Aggregat **1**, Trenneinrichtung **5**) dargestellt, kann aber bei Bedarf beispielsweise auch als Flugstromreaktor ausgeführt werden. Die Pyrolyse wird in der Weise vorgenommen, daß der zugeführte Brennstoff, dessen Korngröße unter 5 mm, vorzugsweise im wesentlichen unter 1 mm liegt, unter Sauerstoffabschluß durch direkten Kontakt mit einem heißen Rauchgas auf Pyrolysetemperatur erwärmt wird. Das Rauchgas wird über eine Zuführung **34** aus der Brennkammer **3** in das Aggregat **1** eingeleitet. Während der Pyrolyse wird der feinteilige Brennstoff entgast. Die freigesetzten Gase und Dämpfe werden zusammen mit dem feinteiligen entgasten Brennstoff (Koks) durch eine Leitung **21** in eine als Zyklon ausgebildete Trenneinrichtung **5** geführt, in der der Koks von den Gasen und Dämpfen abgetrennt wird. Eine der zugeführten Brennstoffmenge entsprechende Menge des angetrennten Koks wird anschließend über eine Leitung **25** in den Vergaser **2** geführt, während die Restmenge über eine Rückführleitung **26** wieder in das Aggregat **1** zurückgeführt wird. Die abgetrennten Gase und Dämpfe werden aus der Trenneinrichtung **5** über eine Leitung **22** dem Brenner **8** der Brennkammer **3** als Brennstoff zugeführt. Die Verbrennung läuft in der Brennkammer **3** vorzugsweise auf einem erhöhten Druckniveau ab und findet als vollständige Verbrennung statt. Daher ist eine vollständige Oxidierung der höheren Kohlenwasserstoffe aus dem Pyrolysegas sichergestellt. Die Verbrennungsluft wird über eine Zuleitung **19** auf einem entsprechenden Druckniveau eingespeist. In vorteilhafter Weiterbildung der Erfindung ist ein Wärmetauscher **12** vorgesehen, der in die Zuleitung **19** eingeschaltet ist und dessen Wärmetauschrflächen innerhalb der Brennkammer **3** angeordnet sind, so daß eine Vorwärmung der Verbrennungsluft stattfindet.

In der Brennkammer **3** ist ein Wärmetauscher **9** angeordnet, dem über eine Zuleitung **17** Dampf zwecks Überhitzung zugeführt werden kann. Außerdem ist in Weiterbildung der Erfindung ein Wärmetauscher **10** in der Brennkammer angeordnet, dem über eine Zuleitung **18** ein sauerstoffhaltiges Gas, vorzugsweise Luft oder reiner Sauerstoff, zur Vorwärmung zugeführt werden kann. Der Ausgang dieses Wärmetauschers **10** ist mit der Zuleitung **17** verbunden, so daß in den Wärmetauscher **9** ein Gemisch aus Wasserdampf und dem vorgewärmten sauerstoffhaltigen Gas zugeführt wird. Nach Überhitzung dieses Gemisches wird dieses über die Leitung **31** in den Vergaser **2** eingeführt.

Durch die Wärmetauscher **9**, **10** und **12** sowie den nachfolgend noch zu erläuternden Wärmetauscher **11** wird dem in der Brennkammer **3** produzierten Rauchgas ein erheblicher Teil seines Wärmeinhalts entzogen, so daß es in deutlich abgekühlter Form über die Rauchgasleitung **32** aus der Brennkammer **3** austritt. Diese Rauchgasleitung **32** verzweigt sich in eine Rauchgasableitung **33** und in die Zuführung **34**, die in das Aggregat **1** führt. Der Mengenstrom der Rauchgasleitung **32** wird in der Weise aufgeteilt, daß eine solche Teilmenge des Rauchgases in die Rauchgasableitung **33** gelangt, die der Summe der Menge der über die Zuleitung **19** dem Brenner **8** zugeführten Verbrennungsluft und der Menge der durch die Pyrolyse im Aggregat **1** freigesetzten Gase und Dämpfe entspricht, die zusammen mit dem durch das Aggregat **1** strömenden Rauchgasstrom dem Brenner **8** zugeführt werden. Ein Teil des Rauchgases wird somit ständig in einem Kreislauf durch die Anlage bewegt. Damit das zirkulierende Rauchgas mit dem erforderlichen Druck wieder in die Brennkammer **3** zurückgespeist wird, ist in die Zuführung **34** ein Verdichter **13** eingeschaltet. Da das aus der Brennkammer **3** ausströmende frische Rauchgas durch die Wärmetauscher seine Temperatur erheblich abgesenkt hat, ist hinter dem Verdichter **13** ein bereits weiter oben erwähnter Wärmetauscher **11** eingeschaltet, dessen Wärmetauschrflächen wiederum innerhalb der Brennkammer **3** angeordnet sind, so daß vor der Zuführung des frischen Rauchgases zum Aggregat **1** eine Aufheizung des Rauchgases auf die für die Pyrolyse zweckmäßige Temperatur erfolgt. Diese Pyrolysetemperatur liegt bei mindestens 450°C. Vorzugsweise beträgt die Pyrolysetemperatur, das heißt die Temperatur des die Pyrolysestufe verlassenden Materials mindestens 600°C, insbesondere etwa 700°C. Aufgrund der Feinteiligkeit des zugeführten Brennstoffs und der Anwendung einer zirkulierenden Wirbelschicht oder einer Flugstromreaktion findet eine sehr schnelle Aufheizung der einzelnen Brennstoffpartikel statt. Die schnelle Aufheizung und die Vermeidung allzu hoher Temperaturen in der Pyrolyse sind für die Ausbildung eines Pyrolysekoks mit feiner Porenstruktur, also großer Oberfläche und somit hoher Reaktivität, sehr günstig. Eine Temperatur von etwa 700 bis 750°C sollte daher nach Möglichkeit in der Pyrolyse nicht überschritten werden. Auf der anderen Seite bietet eine ausreichend hohe Pyrolysetemperatur im Bereich von zum Beispiel 600 oder 700°C die Gewähr, daß eine nahezu vollständige Ausgasung des eingesetzten Brennstoffs in kürzester Zeit stattfindet.

Bemerkenswert ist, daß durch die Verbrennung der in der Pyrolyse freigesetzten Gase und Dämpfe genügend Wärme erzeugt wird, um einerseits die Pyrolyse betreiben zu können und andererseits Wärme zur Erzeugung des zur Vergasung benötigten Gemischs aus Dampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas zur Verfügung zu stellen. Es ist weder notwendig, einen Teil des im erfindungsgemäßen Verfahren produzierten Synthesegases, noch Brennstoff aus anderen Quellen hierfür zur Verfügung zu stellen.

Zweckmäßigerweise werden die Wärmetauscher innerhalb der Brennkammer **3** in Richtung des frischen Rauchgasstroms so angeordnet, daß zunächst die Aufheizung des Rauchgasstromes für die Pyrolyse erfolgt und dann das Gemisch aus Dampf und sauerstoffhaltigem Gas erwärmt wird, bevor die Vorwärmung des für die Vergasung benötigten sauer-

stoffhaltigen Gases erfolgt. Die Vorwärmung der Verbrennungsluft für die Rauchgaserzeugung wird zweckmäßigerweise als letztes unmittelbar vor Austritt des Rauchgases aus der Brennkammer 3 vorgenommen. Sofern in der Brennkammer noch überschüssige Energie zur Verfügung steht, kann diese durch einen nicht dargestellten weiteren Wärmetauscher zur Erzeugung und/oder Überhitzung von Dampf genutzt werden, der auf einer Dampfturbine zur Erzeugung mechanischer

oder elektrischer Energie entspannt wird.

Zweckmäßigerweise wird das für die Vergasung im Vergaser 2 benötigte Gemisch aus Wasserdampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas mit einer Temperatur eingespeist, die etwa der Temperatur der Vergasung entspricht, zumindest nicht wesentlich über oder unter der Vergasungstemperatur liegt. Da die Vergasung eine endotherme Reaktion darstellt, bei der der Kohlenstoffanteil des aus dem Aggregat 1 abgeführten Pyrolysekokes und ein Teil des Wasserdampfes in ein H<sub>2</sub>- und CO-reiches Synthesegas umgesetzt wird, muß eine ausreichende Wärmemenge hierfür zur Verfügung gestellt werden. Dies wird dadurch bewerkstelligt, daß ein Teil des Kohlenstoffs durch die zugeführte Menge an Sauerstoff verbrannt wird. Je mehr Sauerstoff zugeführt wird, um so höher ist die Temperatur und der Anteil an CO<sub>2</sub> im erzeugten Synthesegas. Um den Vergasungsprozeß auf vergleichsweise niedrigem Temperaturniveau bei hoher Umsatzrate ablaufen lassen zu können, ist in vorteilhafter Weiterbildung der Erfindung vorgesehen, aus einem Vorratsbehälter 6 über eine Zuleitung 24 ein feinkörniges Katalysatormaterial in den Vergaser einzuspeisen. Der Vorratsbehälter 6 wird über eine Beladungsvorrichtung 14 mit dem Katalysatormaterial befüllt. Die Förderung des Katalysatormaterials erfolgt zweckmäßigerweise ähnlich wie die Förderung des Brennstoffs in das Aggregat 1 auf pneumatischen Wege mit Hilfe eines Inertgasstroms, der über eine Leitung 23 in den Vorratsbehälter 6 eingespeist werden kann.

Als Katalysatormaterial für die Vergasung eignet sich in besonderer Weise Kaliumcarbonat. Selbstverständlich sind aber auch andere Katalysatoren einsetzbar. Beispielsweise kommen auch bestimmte Natrium- oder Kalziumverbindungen in Frage.

Als besonders zweckmäßig wird jedoch Kaliumcarbonat erachtet. Der Vorteil des Katalysators liegt insbesondere in der Möglichkeit der Erzielung hoher Durchsätze bei relativ niedrigen Temperaturen. Alternativ wäre eine hohe Durchsatzleistung auch bei niedrigeren Temperaturen ohne Katalysatoreinsatz möglich, wenn das Reaktionsvolumen hinreichend vergrößert wird; dies ist allerdings mit einem wirtschaftlich unvorteilhaft hohen Anlagenaufwand verbunden. Eine andere Alternative für die Vergasung besteht darin, unter Verzicht auf einen Katalysator bei gleich bleibendem Reaktionsvolumen die Vergasungstemperatur anzuheben, was mit der Verbrennung eines größeren Anteils des Pyrolysekokes einhergeht.

Der Vergaser 2 ist zweckmäßigerweise als liegender Gasgenerator ausgeführt, der mit einer stationären Wirbelschicht arbeitet. Hierzu wird der Pyrolysekoks in den Raum oberhalb eines Anströmbodens innerhalb des Vergasers 2 eingeführt. Mit Hilfe des Anströmbodens wird das durch die Leitung 31 zugeführte überhitzte Gemisch aus Wasserdampf und sauerstoffhaltigem Gas zugeführt, so daß der feinteilige Koks entsprechend aufgewirbelt wird. Zweckmäßigerweise werden innerhalb des Vergasers 2 Einbauten angeordnet, die den Reaktionsraum in Vergasungszonen unterteilen. Dies kann durch vertikale Zwischenwände erfolgen, die sich über einen Teil der Höhe des liegenden Vergasers 2 erstrecken. In dem dargestellten Ausführungsbeispiel sind zwei solche Trennwände eingezeichnet, so daß sich drei Vergasungszonen 2a-2c bilden. Dadurch soll erreicht werden, daß die Rückvermischung innerhalb des Vergasers auf niedrige Werte begrenzt wird, das heißt zwischen den einzelnen Vergasungszonen soll keine wesentliche Rückvermischung stattfinden, sondern lediglich innerhalb der einzelnen Vergasungszonen. Durch die liegende Anordnung des Vergasers 2 wird eine ausreichende mittlere Verweilzeit für die einzelnen Partikel des Pyrolysekokes gewährleistet, wie dies für die Verarbeitung von Steinkohle besonders zweckmäßig ist. Bei pyrolysierten Brennstoffen mit besonders hoher Reaktivität kann auch ein stehender Gasgenerator zweckmäßig sein, weil die Verweilzeit der einzelnen Partikel kürzer sein darf. Aus der Figur geht hervor, daß am rechten Ende des Vergasers 2 eine Austragvorrichtung angeordnet ist, die trichterförmig ausgebildet und mit dem Bezugszeichen 2d versehen ist. Über diese Austragvorrichtung 2d werden die Ascherückstände nach der Vergasung gesammelt und über eine Leitung 30 abgezogen. Das im Vergaser 2 gebildete Synthesegas, das reich an CO und H<sub>2</sub> ist, wird zunächst in einen Zyklon 7 eingespeist, in dem der enthaltene Staub angetrennt und über eine Leitung 29 in die Ascheableitung 30 gegeben wird. Durch die Leitung 28 kann das gebildete Synthesegas abgezogen werden. Dieses Gas eignet sich aufgrund seines von vornherein vergleichsweise hohen Reinheitsgrades, also insbesondere wegen des Fehlens von wesentlichen Mengen an Schwefelverbindungen, für den Einsatz als Reduktionsgas zur Direktreduktion von Eisenoxiden im Zuge einer Roheisenerzeugung. Mit besonderem Vorteil ist daher die Leitung 28 für das erzeugte Synthesegas mit einer nicht dargestellten Direktreduktionsanlage verbunden.

Vor der Weiterverwendung des Synthesegases aus der Leitung 28 wird üblicherweise eine Gaskühlung vorgenommen, wobei die für den erfindungsgemäßen Prozeß benötigte Dampfmenge erzeugt wird. Zusätzlich empfiehlt sich vielfach noch die Durchführung einer Gaskonditionierung.

Eine andere vorteilhafte Verwendung des erzeugten Synthesegases ist in der Erzeugung von reinem Wasserstoff und/oder Kohlenmonoxid für chemische oder petrochemische Verfahren zu sehen. Zweckmäßig ist auch der Einsatz des Synthesegases im Rahmen der Erzeugung von elektrischem Strom über einen kombinierten Gas/Dampfturbinen-Prozeß.

Die nachfolgenden beiden Ausführungsbeispiele, die sich lediglich in den der Vergasung zugeführten Mengen an Dampf und Luft (als O<sub>2</sub>-haltiges Gas) unterscheiden, verdeutlichen die Wirksamkeit der vorliegenden Erfindung. Dabei wurde Steinkohle in einer Kohlemahl- und Trocknungsanlage auf eine Restfeuchte von ca. 1 bis 2% getrocknet und auf eine Korngröße von maximal 1 mm gemahlen. Dieser Kohlenstaub wurde in einen Pyrolysereaktor gegeben und mit rezirkuliertem heißen Rauchgas, das durch Verbrennung der in der Pyrolyse erzeugten Gase und Dämpfe erzeugt wurde, in einer Wirbelschicht in direkten Kontakt gebracht und entsprechend erwärmt. Dabei bildete sich durch Freisetzung von Gasen und Dämpfen ein Pyrolysekoks. Die Gase und Dämpfe und der staubförmige Pyrolysekoks verließen die Pyrolyse mit einer Temperatur von etwa 700°C. Nach Abscheidung des Pyrolysekokes von den Gasen und Dämpfen in einem Zyklon wurde der Pyrolysekoks einem Vergasungsreaktor zugeführt. Die in der Pyrolyse freigesetzten Gase und Dämpfe wurden unter Druck mit Luft vollständig verbrannt, so daß auch alle höheren Kohlenwasserstoffe inklusive Teere oxidiert wurden. Die dabei erzeugte Wärme wurde benutzt zur Überhitzung des zur Vergasung benötigten Wasserdampfes sowie zur Vorerhitzung der als sauerstoffhaltiges Gas für die Vergasung eingesetzten Luft.

Weiterhin wurde die Verbrennungswärme genutzt zur Wiedererwärmung des Rauchgasteilstroms, der zur Beheizung der Pyrolyse eingesetzt wird. Über eine Zellradschleuse wurde dem Strom des in den Vergaser geführten Pyrolysekokes etwa 4 Gewichtsprozent Kaliumcarbonat als Katalysator zugesetzt. Zur Erzielung eines gleich großen Durchsatz durch die benutzte Anlage hätte ohne die Verwendung eines Katalysators die Vergasungstemperatur um etwa 170°C angehoben werden müssen. In der ersten Stufe der Wirbelschicht des Vergasers vermischte sich der Koks innig mit dem zugeführten Katalysator, so daß bei einer Temperatur von etwa 750°C und 15 bar Druck die Vergasungsreaktion ablief. Wie in dem in der Figur dargestellten Anlagenbeispiel wies der benutzte Vergaser ebenfalls drei Vergasungszonen auf, von denen die zweite und dritte im Volumen jeweils gleich dimensioniert waren. Beim Übergang von der ersten zur zweiten Vergaserzone konnte ein Umsatzgrad des Pyrolysekokes von etwa 26% festgestellt werden. In den beiden nachfolgenden Vergaserzonen lag der Umsatz bei gleicher Temperatur deutlich höher, so daß beim Abzug der Asche aus dem Vergaser ein Gesamtumsatz von 95% des Pyrolysekokes festgestellt werden konnte. Zur weiteren energetischen Nutzung des verbliebenen Kohlenstoffgehaltes wurde die abgezogene Asche einer Wirbelschichtfeuerung zugeführt. In diese Wirbelschichtfeuerung wurde auch der Staubanteil gegeben, der in einem Zyklon abgetrennt wurde, dem das rohe Synthesegas aus dem Vergaser zugeführt wurde.

In den beiden Beispielen der Verfahrensdurchführung wurde jeweils ein Mengenstrom von 100 t/h an Kohle in die Pyrolyse gegeben. Aus der Pyrolyse ergab sich jeweils ein Mengenstrom von etwa 70 t/h an Pyrolysekoks, der in vollem Umfang in die Vergasung gegeben wurde. Nach der Vergasung wurde aus dem Vergaser jeweils ein Mengenstrom von 8,7 t/h an Feststoffen (Asche/Restkoks) abgezogen. In die Pyrolyse wurde jeweils ein heißer Rauchgasstrom von 252.500 Nm<sup>3</sup>/h eingeführt, während jeweils insgesamt 273.200 Nm<sup>3</sup>/h an Pyrolysegas wieder aus der Pyrolyse abgezogen wurden. Im ersten Beispiel wurden 209 t/h Wasserdampf und 61.000 Nm<sup>3</sup>/h Luft als sauerstoffhaltiges Gas in die Vergasungsstufe eingeführt. Mit diesen Parametern ergab sich ein Rohgasstrom von 392.750 Nm<sup>3</sup>/h in der Vergasung. Im zweiten Beispiel wurde die der Vergasung zugeführte Dampfmenge auf 311 t/h deutlich gesteigert, während die Menge an zugeführter Luft mit 61.200 Nm<sup>3</sup>/h nahezu unverändert blieb. Dies führte im zweiten Beispiel zu einem Mengenstrom an Rohgas aus der Vergasung von 536.650 Nm<sup>3</sup>/h. Die Zusammensetzung des Rohgases ist in der Tabelle dargestellt. Unter Berücksichtigung des jeweils im erzeugten Synthesegas noch enthaltenen Wasserdampfanteils ergibt sich, daß durch die deutliche Steigerung der Dampfzufuhr gegenüber dem ersten Beispiel im zweiten Beispiel eine wesentlich höhere Wasserstoffausbeute erzielt werden konnte. Auch der Gehalt an CO und CH<sub>4</sub> im Synthesegas ist im zweiten Beispiel jeweils niedriger als im ersten.

	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	N <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> S	H <sub>2</sub> O
Beispiel 1	23,11	8,96	13,48	4,54	12,57	0,14	37,20
Beispiel 2	23,20	6,35	11,60	1,86	9,22	0,11	47,72

Die Vorteile der vorliegenden Erfindung sind insbesondere in folgenden Punkten zu sehen:

- vereinfachte Gas- und Wasserreinigung
- vereinfachte Kohleneindosierung in den Vergasungsprozeß
- elektrisch autarke Prozeßführung (sogar Export von elektrischer Energie möglich)
- verbesserte Wärmenutzung
- Abgasreinigung unter hohem Druck möglich
- Eignung für ein weites Spektrum von Kohlen und anderen festen Brennstoffen
- einfache Einbindung in Gas- und Dampfturbinenprozeß zur Stromerzeugung möglich
- hoher Wirkungsgrad im Vergleich zu sauerstoffverbrauchenden Verfahren

#### Patentansprüche

1. Verfahren zur autothermen Vergasung von festen Brennstoffen unter Überdruck mit einem O<sub>2</sub>-haltigen Gas, wobei die Brennstoffe zunächst einer thermischen Vorbehandlung durch direkten Kontakt mit einem heißen Rauchgasstrom unter Abspaltung von Gasen und Dämpfen und Bildung eines versprödeten Zwischenproduktes unterzogen werden und wobei der heiße Rauchgasstrom in einer Verbrennung unter Zufuhr der in der thermischen Vorbehandlung abgespaltenen Gase und Dämpfe erzeugt wird, wobei ferner das in der Vorbehandlung erzeugte Zwischenprodukt in feinteiliger Form der Vergasung unter Bildung eines an H<sub>2</sub> und CO reichen Synthesegases unterzogen wird, **dadurch gekennzeichnet**,
  - daß der Brennstoff in feinteiliger Form eingesetzt wird,
  - daß die thermische Vorbehandlung als Pyrolyse mit einer Endtemperatur von mindestens 450°C durchgeführt wird,
  - daß die Vergasung unter Zufuhr von Wasserdampf stattfindet und
  - daß dem heißen Rauchgasstrom vor seiner Einleitung in die thermische Vorbehandlung Wärme zur Erzeugung des zur Vergasung benötigten Gemischs aus Dampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas entzogen wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die thermische Vorbehandlung mit einer Endtemperatur von mindestens 600°C, vorzugsweise etwa 700°C, durchgeführt wird.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß als fester Brennstoff Steinkohle oder Braunkohle eingesetzt wird.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der heiße Rauchgasstrom ausschließlich durch Verbrennung der in der thermischen Vorbehandlung abgespaltenen Gase und Dämpfe erzeugt wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Rauchgasstrom im Kreislauf geführt wird, wobei eine dem Mengenstrom der in die Verbrennung eingeführten Gase und Dämpfe sowie der zugeführten Verbrennungsluft entsprechende Rauchgasmenge abgestoßen wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbrennung als vollständige Verbrennung erfolgt.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbrennung unter Druckaufblauung erfolgt.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Rauchgasstrom nach dem Entzug von Wärme für das Gemisch aus Wasserdampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas und vor seiner Einleitung in die thermische Vorbehandlung durch indirekten Wärmeaustausch mit frisch erzeugtem Rauchgas auf die für die thermische Vorbehandlung erforderliche Temperatur aufgeheizt wird.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbrennungsluft für die Verbrennung der Gase und Dämpfe aus der thermischen Vorbehandlung durch indirekten Wärmeaustausch mit dem frisch erzeugten Rauchgas vorgewärmt wird.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die thermische Vorbehandlung in einer zirkulierenden Wirbelschicht erfolgt.
11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die thermische Vorbehandlung in einem Flugstromreaktor erfolgt.
12. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Vergasung in einem liegenden Gasgenerator mit Wirbelschicht erfolgt.
13. Verfahren nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Vergasung in mehreren hintereinander liegenden Zonen erfolgt, zwischen denen keine nennenswerte Rückvermischung stattfindet.
14. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß als O<sub>2</sub>-haltiges Gas für die Vergasung Luft oder reiner Sauerstoff eingesetzt wird.
15. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß in die Vergasung ein Mengenstrom eines feinteiligen Katalysators, insbesondere feinteiliges Kaliumcarbonat, eingeführt wird.
16. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß das Gemisch aus Wasserdampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas mit einer Temperatur, die etwa der Endtemperatur der Vergasung entspricht, in die Vergasung eingespeist wird.
17. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß überschüssige Wärme aus der Verbrennung der Gase und Dämpfe aus der thermischen Vorbehandlung zur Erzeugung und/oder Überhitzung von Dampf genutzt wird, der auf einer Dampfturbine zur Erzeugung mechanischer oder elektrischer Energie entspannt wird.
18. Anlage zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1, mit einem Aggregat (1) zur thermischen Vorbehandlung eines festen Brennstoffs, mit einer Zuführung (34) für ein heißes Rauchgas und einer Zuführung (15) für den Brennstoff zu dem Aggregat (1), mit einem Vergaser (2), dem der in dem Aggregat (1) vorbehandelte Brennstoff sowie ein O<sub>2</sub>-haltiges Gas und Wasserdampf zuführbar ist und der einen Abzug (27) für das im Vergaser (2) erzeugte an H<sub>2</sub> und CO reiche Gas sowie eine Ascheaustragvorrichtung (2d, 30) aufweist, und mit einer Brennkammer (3) zur Erzeugung des heißen Rauchgases, wobei der Brennkammer (3) über eine Leitung (22) die in dem Aggregat (1) zur thermischen Vorbehandlung erzeugten Gase und Dämpfe als Brennstoff zuleitbar sind, dadurch gekennzeichnet,
  - daß der feste Brennstoff in feinteiliger Form durch eine Zuleitung (20) in das Aggregat (1) zur thermischen Vorbehandlung einleitbar ist,
  - daß das Aggregat (1) als Pyrolyseaggregat auf eine Endtemperatur des vorbehandelten Brennstoff von mindestens 450°C ausgelegt ist und
  - daß in der Brennkammer (3) mindestens ein Wärmetauscher (9, 10) zur Erzeugung des im Vergaser (2) benötigten Gemischs aus Wasserdampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas angeordnet ist.
19. Anlage nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, daß das Aggregat (1) zur thermischen Vorbehandlung auf eine Endtemperatur von mindestens 600°C, vorzugsweise etwa 700°C, ausgelegt ist.
20. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 19, dadurch gekennzeichnet, daß dem Aggregat (1) zur thermischen Vorbehandlung eine Trenneinrichtung (5), insbesondere ein Zyklon, nachgeschaltet ist, über die eine Trennung von Gasen und Dämpfen einerseits und feinteiligem vorbehandelten Brennstoff andererseits durchführbar ist.
21. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß die Leitung (22) die einzige Zuführung für Brennstoff zur Brennkammer (3) ist.
22. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß das Aggregat (1) Teil einer zirkulierenden Wirbelschicht ist.
23. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß das Aggregat (1) als Flugstromreaktor ausgebildet ist.
24. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 23, dadurch gekennzeichnet, daß in der Brennkammer (3) ein erster Wärmetauscher (10) für die Vorwärmung des O<sub>2</sub>-haltigen Gases für die Vergasung angeordnet ist, dessen Ausgang mit einer Zuleitung (17) für Dampf verbunden ist, an die ein zweiter in der Brennkammer (3) angeordneter Wärmetauscher (9) zur Überhitzung des Gemischs aus Wasserdampf und O<sub>2</sub>-haltigem Gas für die Vergasung angeschlossen ist.
25. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 24, dadurch gekennzeichnet, daß am Ausgang der Brennkammer (3) eine Rauchgasleitung (32) angeordnet ist, die sich in eine Rauchgasableitung (33) und in die Zuführung (34) für das heiße Rauchgas zum Aggregat (1) verzweigt.
26. Anlage nach Anspruch 25, dadurch gekennzeichnet, daß in die Zuführung (34) ein Verdichter (13) zur Druckerhöhung des Rauchgasstromes und ein in der Brennkammer (3) angeordneter dritter Wärmetauscher (11) zur Er-

höhung der Temperatur des Rauchgasstromes eingeschaltet sind.

27. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 26, dadurch gekennzeichnet, daß an der Brennkammer (3) mindestens ein Brenner (8) angeordnet ist, dem sowohl die aus dem Aggregat (1) abgezogenen Gase und Dämpfe als auch die benötigte Verbrennungsluft mit erhöhtem Druck zur Gewährleistung einer druckaufgeladenen Verbrennung zuführbar sind.

28. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 27, dadurch gekennzeichnet, daß in der Brennkammer (3) ein vierter Wärmetauscher (12) angeordnet ist, der in eine Zuleitung (19) für die Verbrennungsluft zu dem Brenner (8) der Brennkammer (3) eingeschaltet ist.

29. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 28, dadurch gekennzeichnet, daß der Vergaser (2) als liegender Gas-generator mit Wirbelschicht ausgebildet ist.

30. Anlage nach Anspruch 29, dadurch gekennzeichnet, daß der Vergaser (2) durch Einbauten in mehrere Vergaserzonen aufgeteilt ist, zwischen denen keine wesentliche Rückvermischung des zu vergasenden Brennstoffs stattfindet.

31. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 30, dadurch gekennzeichnet, daß der Vergaser (2) eine Zuleitung (24) für die Einspeisung von feinteiligem Katalysatormaterial aufweist.

32. Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 31, dadurch gekennzeichnet, daß in der Brennkammer (2) ein weiterer Wärmetauscher zur Erzeugung und/oder Überhitzung von Dampf angeordnet ist, der auf einer Dampfturbine zur Erzeugung mechanischer oder elektrischer Energie einsetzbar ist.

33. Verwendung einer Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 32 zur Lieferung des Synthesegases als Reduktionsgas für eine Anlage zur Roheisenerzeugung durch Direktreduktion von Eisenoxiden.

34. Verwendung einer Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 32 zur Lieferung von Synthesegas als Einsatzmaterial an eine Anlage zur Herstellung von reinem Wasserstoff und/oder Kohlenmonoxid für chemische oder petrochemische Prozesse.

35. Verwendung einer Anlage nach einem der Ansprüche 18 bis 32 zur Lieferung von Synthesegas als Brennstoff an eine Anlage zur Erzeugung von elektrischen Strom über einen kombinierten Gas/Dampfturbinen-Prozeß.

Hierzu 1 Scite(n) Zeichnungen

